

УДК 535.338.32

ИЗМЕРЕНИЕ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО САМОУШИРЕНИЯ АТОМНЫХ РЕЗОНАНСНЫХ ЛИНИЙ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ СЕЛЕКТИВНОГО ОТРАЖЕНИЯ

А. В. ПАПОЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 20 августа 1997 г.)

Разработан метод для прямого измерения столкновительного самоуширения резонансных линий плотных атомарных паров с помощью спектров селективного отражения. Экспериментальная реализация для случая резонансных D_1 и D_2 линий Rb подтверждает применимость предложенной методики. Отклонение экспериментально измеренных значений от теоретических составляет не более 20 % в интервале атомных плотностей $7 \cdot 10^{16} - 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

Введение

Определение столкновительного уширения атомных резонансных линий важно как для выявления механизмов столкновения в атомных средах, так и для применений в лазерной спектроскопии и нелинейной оптике. Однако прямое измерение столкновительного уширения хорошо известными методами возможно только для разреженных газов, где $\alpha l \leq 1$ (α — коэффициент поглощения, l — длина поглощающей среды). В случае плотных газов измерения методами прохождения света существенно затруднены. Тем временем в плотных газах, где приближение бинарных столкновений начинает терять силу, можно ожидать новых типов межатомных взаимодействий, которые могут вызвать изменение столкновительного уширения линий. Математически это условие может быть выражено как $N\rho_w^3 \geq 1$, где N — плотность атомов газа, а ρ_w — радиус Вайскопфа для диполь-дипольного взаимодействия.

Спектроскопические исследования плотных газов (в частности, плотных паров металлов) можно успешно проводить, используя схему селективного отражения (СО), когда луч света испытывает зеркальное отражение от границы газа и диэлектрического окна в области атомных резонансных переходов [1-4]. В настоящей работе мы использовали технику СО для определения столкновительного самоуширения резонансных D_1 и D_2 линий плотных атомарных паров рубидия.

Метод селективного отражения

Рассмотрим случай нормального падения света на плоскую

границу раздела между материалом диэлектрического прозрачного окна с показателем преломления n_w (который можно принять не зависящим от частоты света) и резонансной средой с комплексным показателем преломления $\bar{n} = n(1 - ik)$. Выражение для коэффициента отражения, согласно [5], есть

$$R = \frac{(n/n_w - 1)^2 + (\kappa/\kappa_w)^2}{(n/n_w + 1)^2 + (\kappa/\kappa_w)^2}. \quad (1)$$

Принимая во внимание, что $\bar{n}^2 = \bar{\epsilon} = \epsilon' - i\epsilon''$, где ϵ' и ϵ'' — действительная и мнимая части комплексной диэлектрической проницаемости $\bar{\epsilon}$, и используя выражение для n и κ из [5], можно написать

$$R = \frac{(\sqrt{\epsilon' + \sqrt{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2}} - \sqrt{2}n_w)^2 - \epsilon' + \sqrt{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2}}{(\sqrt{\epsilon' + \sqrt{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2}} + \sqrt{2}n_w)^2 - \epsilon' + \sqrt{(\epsilon')^2 + (\epsilon'')^2}}. \quad (2)$$

Для изолированных резонансных линий газов (включая плотные газы)

$$\bar{\epsilon}(\omega) = 1 + \frac{4\pi e^2 f N}{m\omega_0(\omega_0 - \omega + \Delta\omega_L - i\Gamma)}. \quad (3)$$

Здесь e и m — заряд и масса электрона, f и ω_0 — сила осциллятора и резонансная частота атомного перехода, ω — частота света,

$$\Delta\omega_L = -\frac{4\pi e^2 f N}{3m\omega_0} \quad (4)$$

— красное лоренцево смещение, обусловленное локальными полями [4], и

$$\Gamma = \gamma_{nat} + \gamma_{self} + \gamma_{buf} \quad (5)$$

— однородное уширение резонансной линии, включающее радиационную ширину (γ_{nat}), столкновительное самоуширение (γ_{self}) и уширение, обусловленное столкновениями с атомами буферного газа (γ_{buf}). Согласно [6],

$$\gamma_{self} = \frac{4\pi e^2 f}{m\omega_0} \sqrt{\frac{2J_g + 1}{2J_e + 1}} N \quad (6)$$

(полная ширина на полувысоте), где J_g и J_e — квантовые числа угловых моментов основного и возбужденного состояний соответственно.

Заметим, что уравнение (3) эквивалентно уравнению Лоренц-Лоренца

$$\frac{\bar{\epsilon} - 1}{\bar{\epsilon} + 2} = \frac{4\pi}{3} N \bar{\alpha}, \quad (7)$$

где $\bar{\alpha}$ представляет комплексную поляризуемость атомов. Разделяя действительную (ϵ') и мнимую (ϵ'') части в уравнении (3), получим

$$\epsilon'(\omega) = 1 + \frac{4\pi e^2 f N}{m\omega_0} \frac{\omega_0 - \omega + \Delta\omega_L}{(\omega_0 - \omega + \Delta\omega_L)^2 + \Gamma^2}, \quad (8)$$

$$\epsilon''(\omega) = \frac{4\pi e^2 f N}{m\omega_0} \frac{\Gamma}{(\omega_0 - \omega + \Delta\omega_L)^2 + \Gamma^2}. \quad (9)$$

Подстановка (8) и (9) в уравнение (2) дает выражение для зависящего от частоты коэффициента отражения $R(\omega)$. Эта зависимость асимметрична, с минимумом на красном крыле резонансной линии и максимумом (более выраженным) на синем крыле (см. рис. 1).

Вышеизложенные результаты показывают, что имея экспериментальную зависимость коэффициента отражения от частоты, почти непосредственно можно определить спектроскопические параметры атомного газа, включая силу осциллятора, столкновительное уширение, плотность атомов и т. д. Следует отметить, что метод СО работает даже при наивысших достижимых плотностях атомов, когда глубина проникновения резонансного света в среду меньше, чем длина волны. Однако, насколько нам известно, было проведено лишь несколько экспериментов по СО в плотных парах ($\gamma_{self} \gg \gamma_{nat}$) — по определению лоренцева красного сдвига [4] и по магнито-оптическим исследованиям [7]. В настоящей работе мы также ограничимся случаем плотных паров без примеси буферного газа ($\gamma_{buf} = 0$), так что в (5) $\Gamma = \gamma_{self}$.

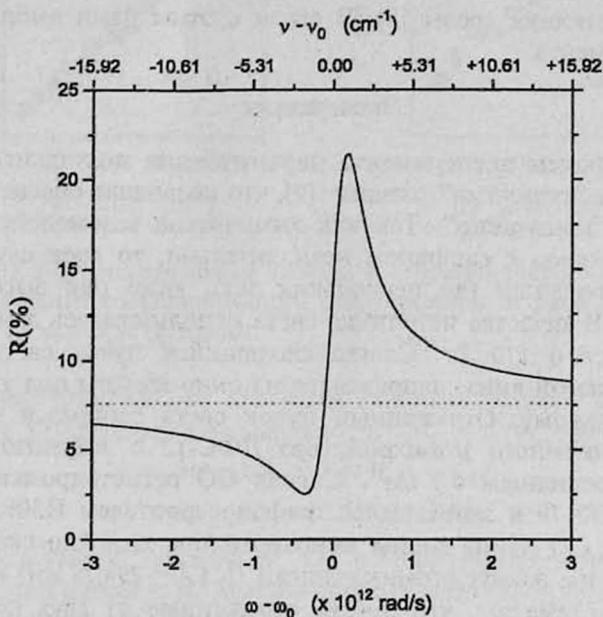


Рис.1. Спектр селективного отражения для D_2 линии Rb при плотности паров $N = 2,65 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Пунктирная линия показывает коэффициент отражения поверхности сапфир-вакуум (7,58 %).

Положения экстремумов $R(\omega)$ зависят от N . Хотя аналитическое выражение для производной $dR(\omega)/d\omega$ получается довольно сложным, численные расчеты показывают, что частотное расстояние $\Delta\omega_{mm}$ между максимумом и минимумом R линейно зависит от N , более того, $\Delta\omega_{mm} \sim 2\Gamma$. Отношение максимального значения R к минимальному для D -линий атомарных паров щелочных металлов составляет 4–5 (D_1) и 8–9 (D_2), независимо от N , что легко регистрировать в эксперименте.

Таким образом, зная значения ω_0 , f , N , J_g и J_e и используя

уравнения (2), (8) и (9), можно определить теоретическое значение $\Delta\omega_{mm}$ и коэффициент пропорциональности $\Delta\omega_{mm} \sim \gamma_{self}$ (предполагая, что выражение (6) имеет силу для данного N). С другой стороны, зависимость $\Delta\omega_{mm}$, а значит и γ_{self} , от N может быть измерена в эксперименте. Отклонение экспериментальной зависимости $\gamma_{self}(N)$ от теоретической может дать информацию о видоизменении механизма межатомного взаимодействия в плотных парах.

Имеются две возможные схемы эксперимента. Первая – используя широкополосный источник света (например, лампу накаливания), исследовать спектр СО посредством спектрометра. Вторая – используя излучение узкополосного перестраиваемого лазера, сканировать частоту в резонансной области, регистрируя интенсивность сигнала СО при каждом значении частоты (без какого-либо спектрального прибора). Отметим, что спектральная интенсивность падающего света должна поддерживаться на возможно низком уровне во избежание искажения спектра СО из-за существенного заселения возбужденного состояния и нелинейного отклика среды [8]. В связи с этим нами выбрана первая схема эксперимента.

Эксперимент

В настоящем эксперименте пары рубидия получались в сапфировой кювете с "горячими" окнами [9], что позволяло обеспечивать резкую границу "пары-окно". Так как химическое взаимодействие паров щелочных металлов с сапфиром незначительно, то срок службы таких кювет очень большой (до нескольких лет), даже при высоких плотностях паров. В качестве источника света использовалась лампа накаливания мощностью 170 Вт. Слегка сходящийся пучок света, сформированный системой линз, направлялся на окно кюветы под углом, близким к нормальному. Отраженный пучок света собирался на входной щели дифракционного монохроматора ДФС-12 с эффективным спектральным разрешением $0,2 \text{ см}^{-1}$. Сигнал СО регистрировался фотоумножителем ФЭУ-79 и записывался графопостроителем Н306. Для получения спектра СО длина волны монохроматора линейно сканировалась в области $1,87 \text{ нм}$ вокруг атомных линий D_1 ($\lambda = 794,76 \text{ нм}$) или D_2 ($\lambda = 780,02 \text{ нм}$) Rb. Заметим, что пучки, отраженные от двух поверхностей окна кюветы (воздух-сапфир и сапфир-пары) не разделялись пространственно друг от друга, что обуславливало постоянный фон на сигнале СО ($\approx 7.6\%$) из-за отражения от внешней поверхности.

Спектры СО записывались при различных плотностях N паров Rb в области $7 \cdot 10^{16} - 7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. При более низких плотностях ширина спектра СО становится сравнимой со спектральным разрешением монохроматора, а при более высоких плотностях (т.е. при $T > 470^\circ\text{C}$) была угроза расплавить небольшой стеклянный отросток на теле сапфировой кюветы. Определение величины N производилось следующим образом. Градуированной термпарой "хромель-алюмель" измерялась температура в самой холодной части кюветы и по имеющимся в литературе таблицам [10] определялось давление насыщенных паров. Соответствующие значения плотности паров рассчитывались согласно известному выражению для идеального газа:

$$N = \frac{P}{kT}, \quad (10)$$

где p — давление паров, k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура. Отметим, что более корректное выражение для N должно учитывать поправочные параметры, описывающие притягивающий и отталкивающий механизмы межатомного взаимодействия. К сожалению, эти параметры для паров Rb в литературе не найдены.

В исследуемой области температур пары содержат небольшой процент димеров Rb_2 , которые, однако, не могут существенно изменить спектр СО из-за нерезонансной природы взаимодействия $Rb-Rb_2$ (сечение последнего примерно в 100 раз меньше, чем в случае $Rb-Rb$).

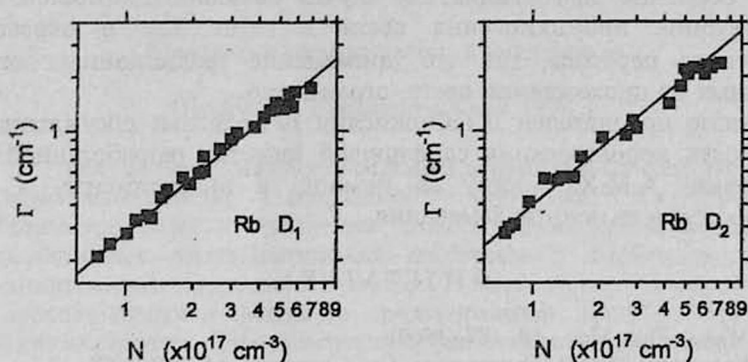


Рис.2. Экспериментальные (точки) и теоретические (линии) зависимости столкновительного самоуширения от плотности паров Rb для D_1 и D_2 линий.

Анализ зависимости $R(\omega)$ для границы “сапфир-пары Rb”, рассчитанной с использованием выражений (2), (8) и (9), показывает, что

$$\Delta\omega_{mm}(D_1) = 2,334\gamma_{self}(D_1), \quad (11)$$

$$\Delta\omega_{mm}(D_2) = 2,622\gamma_{self}(D_2) \quad (12)$$

во всей исследуемой области N , т.е. измерение частотного расстояния между максимальным и минимальным значениями $R(\omega)$ (см. рис.1) непосредственно дает величину столкновительного самоуширения. Экспериментальные зависимости $\gamma_{self}(N)$ представлены на рис.2 для атомных линий D_1 и D_2 Rb вместе с теоретическими зависимостями, рассчитанными согласно (6). Разброс экспериментальных данных в $\approx 20\%$ вокруг теоретических значений Γ обусловлен в основном тепловыми конвекциями воздуха вблизи окна нагретой кюветы, а также отношением сигнал-шум в системе регистрации. Заметим, что доплеровское уширение линий в условиях настоящего эксперимента не превышает $0,03 \text{ см}^{-1}$, что не может сказаться на экспериментальных результатах.

Из приведенных графиков можно заключить, что в указанном диапазоне плотностей отклонение от приближения бинарных столкновений, описываемых выражением (6), еще не наблюдается. Следует отметить, что целью настоящей работы являлось скорее обоснование применимости предложенного метода селективного

отражения, чем выявление видоизменения механизма межатомного взаимодействия в плотных парах.

Заключение

Измеряя частотное расстояние между экстремумами экспериментально полученного спектра селективного отражения на границе раздела "диэлектрическое окно-пары металла", можно непосредственно определить величину столкновительного самоуширения атомных резонансных линий. Теми же измерениями можно получить также значения силы осциллятора, плотности паров, однородного уширения буферным газом, лоренцев красный сдвиг спектральной линии и т.д. Описанная техника особенно эффективна для случая больших плотностей паров, когда глубина проникновения света в пары $\leq \lambda$ в окрестности резонансного перехода, так что применение традиционных методов, основанных на прохождении света, ограничено.

Автор признателен Д.Г.Саркисяну за полезные обсуждения и за возможность использования сапфировой кюветы, разработанной в его лаборатории, А.М.Ханбекяну за помощь в эксперименте, а также М.Е.Мовсисяну за ценные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.W. Wood. *Phil. Mag.*, **18**, 187 (1909).
2. J.P. Woerdman, M.F.H. Schuurmans. *Opt. Commun.*, **14**, 248 (1975).
3. S. Le Boiteux, P. Simoneau, D. Bloch, M. Ducloy. *J. Phys. B*, **20**, L149 (1987).
4. J.J. Maki, M.S. Malcuit, J.E. Sipe, R.W. Boyd. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 972 (1991).
5. W.J. Condell, H.J. Mandelberg. *J. Opt. Soc. Am.*, **54**, 973 (1964).
6. E.L. Lewis. *Phys. Rep.*, **58**, 1 (1980).
7. H. van Kampen, A.V. Papoyan, V.A. Sautenkov, P.H.A.M. Castermans, E.R. Eliel, J.P. Woerdman. *Phys. Rev. A*, **56**, 310 (1997).
8. V.A. Sautenkov, H. van Kampen, E.R. Eliel, J.P. Woerdman. *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3327 (1996).
9. D.H. Sarkisyan, A.V. Papoyan. *Appl. Opt.*, **35**, 3207 (1996).
10. Ch. Shang-Yi. *Phys. Rev.*, **58**, 884 (1940).

MEASUREMENT OF COLLISIONAL SELF BROADENING OF ATOMIC RESONANCE LINES IN SELECTIVE REFLECTION EXPERIMENT

A. V. PAPOYAN

A method is developed to measure directly the collisional selfbroadening rate for a dense atomic vapor from selective reflection spectra. Experimental realization for the atomic D_1 and D_2 resonance lines of Rb confirms a validity of the proposed technique. The deflection of experimentally measured values is not more than 20% from theoretically predicted ones in the atomic number density range of $7 \cdot 10^{16} - 7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.